



(51) 国際特許分類7 H05B 33/04	A1	(11) 国際公開番号 WO00/60904 (43) 国際公開日 2000年10月12日(12.10.00)
(21) 国際出願番号 PCT/JP00/02174 (22) 国際出願日 2000年4月4日(04.04.00) (30) 優先権データ 特願平11/97794 1999年4月5日(05.04.99) JP (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) チッソ株式会社(CHISSO CORPORATION)[JP/JP] 〒530-0055 大阪府大阪市北区中之島三丁目6番32号 Osaka, (JP) (72) 発明者 ; および (5) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ) 泉澤勇昇(IZUMIZAWA, Takenori)[JP/JP] 〒236-0024 神奈川県横浜市金沢区乙舩町10-2 Kanagawa, (JP) 古川顕治(FURUKAWA, Kenji)[JP/JP] 〒239-0831 神奈川県横須賀市久里浜一丁目16番7号 Kanagawa, (JP) (74) 代理人 畑中芳実, 外(HATANAKA, Yoshimi et al.) 〒101-0042 東京都千代田区神田東松下町37 林道ビル5階 扶桑特許事務所 Tokyo, (JP)		(81) 指定国 KR, US, 欧州特許 (DE, FR, GB) 添付公開書類 国際調査報告書
(54) Title: ORGANIC EL DEVICE (54) 発明の名称 有機EL素子 <div data-bbox="394 1325 1177 1650"></div> (57) Abstract An organic EL device having an organic EL structure which water content does not enter and maintaining stable luminescence characteristics for long period of time. An anode (2), an organic layer (3), and a cathode (4) are formed on a transparent substrate (1). A multilayer body (insulating layer-water reacting layer multilayer body) comprising an insulating layer (5) and a water reacting layer (6) formed on the insulating layer (5) covers an organic EL structure including a part of the anode, the organic layer, and the cathode. The material of the water reacting layer (6) is a metal the electronegativity during poling of which is less than 1.2. There are large differences in the number of dark spots produced and the growth of the dark spots between a metal, e.g., Ca (1.0), the electronegativity of which is less than 1.2 and a metal, e.g., Mg (1.2), the electronegativity of which is 1.2.		

(57)要約

本発明は、有機EL構造体への水分侵入を防止することにより、長期にわたって安定した発光特性を維持する有機EL素子に関する。本発明では、透明基板1の表面に、陽極2、有機物層3、陰極4を形成する。そして、陽極の一部、有機物層及び陰極を含む有機EL構造体を覆うように、絶縁層5とその上に設けられた水分反応層6とからなる積層体（絶縁－水分反応層積層体）を設ける。水分反応層6を形成する物質には、ポーリングの電気陰性度が1.2未満の金属が選ばれる。上記電気陰性度が1.2未満と1.2の境界にある金属はCa(1.0)とMg(1.2)であり、CaとMgとではダークスポットの発生数と成長に大きな差がある。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AG	アンティグア・バーブーダ	DZ	アルジェリア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AL	アルバニア	EE	エストニア	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AU	オーストラリア	FR	フランス	LS	レソト	SK	スロヴァキア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BE	ベルギー	GE	グルジア	MA	モロッコ	TD	チャード
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MC	モナコ	TG	トーゴ
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BJ	ベナン	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BR	ブラジル	GR	ギリシャ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TR	トルコ
BY	ベラルーシ	GW	ギニア・ビサウ		共和国	TT	トリニダード・トバゴ
CA	カナダ	HR	クロアチア	ML	マリ	TZ	タンザニア
CF	中央アフリカ	HU	ハンガリー	MN	モンゴル	UA	ウクライナ
CG	コンゴ	ID	インドネシア	MR	モーリタニア	UG	ウガンダ
CH	スイス	IE	アイルランド	MW	マラウイ	US	米国
CI	コートジボワール	IL	イスラエル	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CM	カメルーン	IN	インド	MZ	モザンビーク	VN	ヴェトナム
CN	中国	IS	アイスランド	NE	ニジェール	YU	ユーゴスラヴィア
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NL	オランダ	ZA	南アフリカ共和国
CU	キューバ	JP	日本	NO	ノルウェー	ZW	ジンバブエ
CY	キプロス	KE	ケニア	NZ	ニュージーランド		
CZ	チェコ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KR	韓国	RO	ルーマニア		

明 細 書

有機EL素子

5 技術分野

本発明は有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、有機EL素子と記す）に関し、特に封止構造を改良した有機EL素子に関する。

背景技術

- 10 チン・ワン・タンが特開昭57-51781号公報に新しい有機EL素子を発表して以来、有機EL素子に関する技術は急速に進歩し、高輝度の明るい素子、多色素子が得られるようになったが、この素子は寿命が短いという問題が今後の解決すべき課題として残されている。

- 有機EL素子の長寿命化に関する技術は、主に耐性の高い有機化合物
15 の開発と、外部汚染物質の侵入、特に水分や酸素の侵入を防止する封止技術の改善に力点が置かれている。有機EL構造体に侵入した水分が、一対の電極とこれらに挟持された有機物層とからなる積層体中に陰極表面の欠陥から侵入すると、有機物層と陰極との間の剥離を招き、その結果通電が得られなくなって発光しない部位、いわゆるダークスポット
20 （黒点）が発生することが知られている。

- 前記ダークスポットの発生を抑制するためには、有機EL構造体への水分の侵入を防ぐことが必要である。従来、有機EL構造体への水分の侵入を防止する手段を設けた有機EL素子としては、例えば、陽極、有機物層、陰極を積層してなる構造体の外側に、さらに乾燥剤を含有する
25 保護層及び封止層を積層した構造を有するもの（特開平7-169567号）、対向する一対の電極間に有機物層が挟持された積層体を気密ケ

ース内に収納し、この積層体から隔離して気密ケース内に酸化バリウム、酸化カルシウム、硫酸カルシウム、塩化カルシウムなどからなる乾燥手段を配設することにより、気密ケース内に積層体及び乾燥手段を中空封止してなるもの（特開平 9-148066 号）などが提案されている。

- 5 しかしながら、前述した従来の有機 EL 素子は、有機 EL 構造体への水分侵入を十分に防止することができないものであった。すなわち、構造体の外側に乾燥剤を含有する保護層を積層した前記有機 EL 素子、及び気密ケース内に乾燥手段を設けた前記有機 EL 素子は、いずれも有機 EL 素子内に侵入した水分が乾燥剤に十分に吸収されず、その結果、水分が有機 EL 構造体に侵入してダークスポットが発生するという問題点を有していた。

本発明は、前述した事情に鑑みてなされたもので、その目的は、有機 EL 構造体への水分侵入を防止することにより、長期にわたって安定した発光特性を維持する有機 EL 素子を提供することにある。

15

発明の開示

- 本発明者は、前記目的を達成するために鋭意検討を行った結果、陽極、有機物層及び陰極を含む有機 EL 構造体を覆うように、絶縁層とその上に設けられた水分反応層とからなる積層体を形成した場合、特に上記水分反応層をポーリングの電気陰性度が 1.2 未満の金属を含む層とした場合、上記金属と水分とが速やかに反応して有機 EL 構造体に水分が侵入することが効果的に防止されるとともに、有機 EL 構造体と水分反応層との短絡が生じなくなり、その結果、長期にわたってダークスポットのない安定した発光特性を維持する有機 EL 素子が得られることを知見し、本発明をなすに至った。

25

したがって、本発明は、下記（１）、（２）に示す有機 EL 素子を提

供する。

(1) 透明基板の表面に設けられた陽極と、陽極に対向して設けられた陰極と、陽極と陰極との間に設けられた発光層を含む有機物層とを有する有機EL素子において、前記陽極の一部、有機物層及び陰極を含む有機EL構造体を覆うように、絶縁層とその上に設けられた水分反応層とからなる積層体（絶縁－水分反応層積層体）の少なくとも1層を設けることを特徴とする有機EL素子。

(2) 水分反応層が、ポーリングの電気陰性度が1.2未満の金属を含む(1)の有機EL素子。

10 この場合、本発明においては、後述する実施形態に示すように、下記(3)～(9)示す構成を好適に採用することができる。

(3) 水分反応層が、実質的にポーリングの電気陰性度が1.2未満の金属のみからなる(2)の有機EL素子。

15 (4) 水分反応層と陽極との間に陽極絶縁層を設けた(1)～(3)の有機EL素子。

(5) 陽極の一部、有機物層、陰極及び絶縁－水分反応層積層体を含む有機EL構造体の上方に封止基板を設け、この封止基板を透明基板に封止基板接着剤で固着した(1)～(4)の有機EL素子（後記第1の実施形態）。

20 (6) 陽極の一部、有機物層、陰極及び絶縁－水分反応層積層体を含む有機EL構造体を封止モールドニング剤でモールドした(1)～(4)の有機EL素子（後記第2の実施形態）。

25 (7) 陽極の一部、有機物層、陰極及び絶縁－水分反応層積層体を含む有機EL構造体の上に、水分反応性物質を高分子結着剤に分散させてなる物質により形成された水分予備反応層を設けるとともに、この水分予備反応層を封止モールドニング剤でモールドした(1)～(4)の有機

E L 素子。

(8) 水分反応性物質が、ポーリングの電気陰性度が 1.2 未満の金属の 1 種又は 2 種以上である (7) の有機 E L 素子。

(9) 高分子結着剤が、熱又は光硬化性樹脂である (7)、(8) の有機 E L 素子。

図面の簡単な説明

- 図 1 は本発明の第 1 の実施形態の第 1 の例を示す断面図である。
図 2 は本発明の第 1 の実施形態の第 2 の例を示す断面図である。
10 図 3 は本発明の第 1 の実施形態の第 3 の例を示す断面図である。
図 4 は本発明の第 2 の実施形態の第 1 の例を示す断面図である。
図 5 は本発明の第 2 の実施形態の第 2 の例を示す断面図である。
図 6 は本発明の第 2 の実施形態の第 3 の例を示す断面図である。
図 7 は本発明の第 3 の実施形態の第 1 の例を示す断面図である。
15 図 8 は本発明の第 3 の実施形態の第 2 の例を示す断面図である。
図 9 は水分反応層の物質がダークスポットの数に及ぼす影響を示すグラフである。
図 10 は水分反応層の物質がダークスポットの平均直径に及ぼす影響を示すグラフである。

20

発明を実施するための最良の形態

次に、本発明の実施の形態について図面を参照して説明する。

(実施形態 1)

- 図 1 は本発明の第 1 の実施形態の第 1 の例を示す断面図である。透明
25 基板、例えばガラス基板 1 の上に、ITO (インジウム錫酸化物) の陽極 2、発光層を含む有機物層 3 及び陰極 4 からなる有機 E L 構造体を形

成する。この場合、有機EL構造体の各層の材料、構成等に何ら限定はない。例えば、陽極材料としてはITOの他に酸化錫（NE SA）、金、銀、白金、銅等を使用でき、陰極材料としてはインジウム、マグネシウム、アルミニウム、マグネシウム－インジウム合金、マグネシウム－銀合金、マグネシウム－アルミニウム合金等を使用できる。また、有機EL構造体の構造は、例えば①陽極／発光層／陰極、②陽極／正孔輸送層／発光層／電子輸送層／陰極、③陽極／発光層／電子輸送層／陰極、④陽極／正孔輸送層／発光層／陰極などの任意の構造とすることができる。

前記有機EL構造体の上に絶縁層5を設けて有機物層3と陰極4を完全に覆い、この絶縁層5の上に水分反応層6を好ましくは0.2～1μmの厚さに形成する。すなわち、陽極2の一部、有機物層3及び陰極4を含む有機EL構造体を覆うように、絶縁層5とその上に設けられた水分反応層6とからなる積層体（絶縁－水分反応層積層体）を設ける。絶縁層5は、水分反応層6と有機EL構造体との短絡を防ぐために設けられるものである。絶縁層5と水分反応層6とからなる絶縁－水分反応層積層体が設けられた有機EL構造体の上方に封止基板8を設け、この封止基板8をガラス基板1に封止基板接着剤7で固着する。

水分反応層6には、室温で水と速やかに反応し易い、ポーリングの電気陰性度が1.2未満である金属、例えば金属リチウム（ポーリングの電気陰性度：1.0）、金属ナトリウム（同：0.9）、金属カリウム（同：0.8）、金属ルビジウム（同：0.8）、金属セシウム（同：0.7）、金属カルシウム（同：1.0）、金属ストロンチウム（同：1.0）、金属バリウム（同：0.9）などが使用される。この場合、水分反応層6は、ポーリングの電気陰性度が1.2未満の金属と他の物質との混合物で形成してもよいが、有機EL構造体への水分侵入防止効果の点で、実質的にポーリングの電気陰性度が1.2未満の金属のみに

よって形成することが好ましい。

水分反応層 6 が $0.05\ \mu\text{m}$ より薄いと、水分反応層 6 に含まれる金属の量が少なくなり、有機 EL 構造体への水分侵入阻止能が低くなるため、有機 EL 素子の寿命が短くなって実用に支障を来す。また、水分反

5 応層 6 は厚ければ厚いほど有機 EL 素子の寿命が長くなり好ましいが、余り厚くすると下の絶縁層 5 との熱膨張率の差に起因して水分反応層 6 に亀裂が入ることがある。厚さの限度は $3\ \mu\text{m}$ 程度である。それ故、水分反応層 6 の厚さは $0.05\sim 3\ \mu\text{m}$ 程度、さらに安全を図るなら $0.05\sim 1\ \mu\text{m}$ 程度にするのがよい。

- 10 絶縁層 5 は水分反応層 6 と有機 EL 構造体との短絡を防ぐために設けられるものであるから、絶縁層 5 に使用される物質としては、必ずしも限定されないが、導電率が $10^{-14}\ \text{S/m}$ 以下の絶縁性物質であればいずれも使用可能である。具体的には、金属酸化物、金属窒化物、金属炭化物、金属硫化物、金属塩化物、金属弗化物、金属硫酸塩、有機化合物、
- 15 有機金属化合物などを用いることができる。絶縁層 5 は、上記絶縁性物質の多層構造であっても構わない。

- 封止基板接着剤 7 には、水分不透過性樹脂が好適に使用され、具体的には、例えば熱又は光硬化性のエポキシ系樹脂、アクリル系樹脂、ポリイミド系樹脂、シリコーンポリイミド樹脂、シリコーン樹脂、シリコーンゴム、ポリオレフィン系樹脂などが用いられる。
- 20

封止基板 8 には、水分不透過性物質が使用され、具体的には、例えばガラスや、ステンレス鋼、アルミニウムといった金属などが用いられる。

(実施形態 2)

- 図 2 は本発明の第 1 の実施形態の第 2 の例を示す断面図である。ガラス
- 25 ス基板 1 の上に、ITO の陽極 2、有機物層 3 及び陰極 4 を形成し、この上に絶縁層 5 を設け、この上に水分反応層 6 を設ける。ここまでは図

1 に示した第 1 の例と同じである。第 2 の例においては、絶縁層 5 と水分反応層 6 とからなる絶縁-水分反応層積層体を 2 層連続して設ける。すなわち、第 1 の例において説明したように、水分反応層 6 は厚くすると亀裂が入るので余り厚くできない。それ故、水分反応層 6 を複数層に分け、間に絶縁層 5 を挟むようにすると、各水分反応層 6 の厚さは薄くなって亀裂が入ることが防止され、しかも水分反応層 6 の合計の厚さを厚くして金属量を増やし、有機 EL 構造体への水分侵入阻止能を高めて有機 EL 素子の長寿命化を図ることができる。絶縁層 5 と水分反応層 6 とからなる絶縁-水分反応層積層体の数は、多ければ多いほど良いのであるが、層数を多くするとそれだけ手間と材料費がかかり、コストが高くなるので、自ずから限度がある。

(実施形態 3)

図 3 は本発明の第 1 の実施形態の第 3 の例を示す断面図である。本例は、図 1 に示した有機 EL 素子の有機物層 3 の外側の陽極 2 の一部に陽極絶縁層 11 を設けるとともに、水分反応層 6 を絶縁層 5 の側面まで延ばすことにより、絶縁層 5 の側面から有機物層 3 に向かって侵入しようとする水分、特に有機物層 3 の側面に向かって侵入しようとする水分を阻止するものである。

陽極絶縁層 11 に使用される物質としては、必ずしも限定されないが、絶縁層 5 と同じ物質、すなわち導電率が 10^{-14} S/m 以下の絶縁性物質であればいずれも使用可能である。具体的には、金属酸化物、金属窒化物、金属炭化物、金属硫化物、金属塩化物、金属弗化物、金属硫酸塩、有機化合物、有機金属化合物などを用いることができる。陽極絶縁層 11 は、上記絶縁性物質の多層構造であっても構わない。

陽極絶縁層 11 は、図 2 の第 2 の例に対しても適用できる。第 1 及び第 2 の例では、水分反応層 6 を絶縁層 5 の側面まで延ばそうとすると陽

極 2 と短絡する危険性があったので、水分反応層 6 を絶縁層 5 の側面まで延ばすのは難しかった。これに対し、陽極絶縁層 11 を設けると、水分反応層 6 と陽極 2 とが短絡しなくなるので、水分反応層 6 を陽極絶縁層 11 に接するまで延ばすことができ、水分侵入阻止効果をさらに高めることができ、長寿命化が図れる。

(実施形態 4)

図 4 は本発明の第 2 の実施形態の第 1 の例を示す断面図である。ガラス基板 1 の上に、ITO の陽極 2、有機物層 3 及び陰極 4 からなる有機 EL 構造体を形成する。この有機 EL 構造体の上に絶縁層 5 を設けて有機物層 3 と陰極 4 を完全に覆い、この上に水分反応層 6 を 0.05 ~ 1 μm の厚さに形成する。絶縁層 5、水分反応層 6 を構成する物質は前述のものと同じである。絶縁層 5 と水分反応層 6 が設けられた有機 EL 構造体を封止モールドニング剤でモールドニングして封止モールドニング体 9 を形成し、有機 EL 構造体を封止する。

封止モールドニング体 9 は、水分反応層 6 が直接空気に触れて空気中の水分と反応することを防ぐためのものである。したがって、封止モールドニング体 9 には、水分不透過性樹脂が好適に使用され、具体的には、例えば熱又は光硬化性のエポキシ系樹脂、アクリル系樹脂、ポリイミド系樹脂、シリコーンポリイミド樹脂、シリコーン樹脂、シリコーンゴム、ポリオレフィン系樹脂などが用いられる。封止モールドニング体 9 を使用した場合、封止基板を使用した場合と比べてコストが安くなるという利点を得られる。

(実施形態 5)

図 5 は本発明の第 2 の実施形態の第 2 の例を示す断面図である。ガラス基板 1 の上に、ITO の陽極 2、有機物層 3 及び陰極 4 を形成し、この上に絶縁層 5 を設け、この上に水分反応層 6 を設ける。ここまでは図

4 に示した第 1 の例と同じである。第 2 の例においては、絶縁層 5 と水分反応層 6 とからなる絶縁－水分反応層積層体を 2 層連続して設ける。絶縁－水分反応層積層体を複数層設ける理由は、図 2 の例で説明したのと同じである。そして効果も同じである。絶縁層 5 と水分反応層 6 が設けられた有機 EL 構造体を封止モールドニング剤でモールドニングして封止モールドニング体 9 を形成し、有機 EL 構造体を封止する。

(実施形態 6)

図 6 は本発明の第 2 の実施形態の第 3 の例を示す断面図である。本例は、図 4 に示した有機 EL 素子の有機物層 3 の外側の陽極 2 の一部に陽極絶縁層 11 を設けるとともに、水分反応層 6 を絶縁層 5 の側面まで延ばすことにより、絶縁層 5 の側面から有機物層 3 に向かって侵入しようとする水分、特に有機物層 3 の側面に向かって侵入しようとする水分を阻止するものであり、図 3 の例と同じ考え方に基づくものである。したがって、陽極絶縁層 11 には図 3 の例と同じ物質が使用される。陽極絶縁層 11 は、図 5 の第 2 の例に対しても適用できる。

(実施形態 7)

図 7 は本発明の第 3 の実施形態の第 1 の例を示す断面図である。ガラス基板 1 の上に、ITO の陽極 2、有機物層 3 及び陰極 4 からなる有機 EL 構造体を形成し、この上に絶縁層 5、水分反応層 6 を形成する。ここまでは、図 4 で説明した例と同じである。本例では、絶縁層 5 と水分反応層 6 が設けられた有機 EL 構造体を覆うように水分予備反応層 10 を設け、さらにこの上を封止モールドニング剤でモールドニングして封止モールドニング体 9 を形成し、有機 EL 構造体を封止する。つまり、図 4 の有機 EL 素子の絶縁－水分反応層積層体と封止モールドニング体 9 との間に水分予備反応層 10 を追加したものである。

水分予備反応層 10 は、有機 EL 構造体への水分の侵入をより確実に

阻止するためのものである。この水分予備反応層 10 は、水分反応性物質を高分子結着剤に分散させてなる物質で形成する。この場合、水分反応性物質としては、水分反応層 6 に用いる水分反応性物質と同じ物質、すなわちポーリングの電気陰性度が 1.2 未満の金属の 1 種又は 2 種以上を好適に用いることができる。また、高分子結着剤には、水分不透過性樹脂が好適に使用され、具体的には、例えば熱又は光硬化性のエポキシ系樹脂、アクリル系樹脂、ポリイミド系樹脂、シリコンポリイミド樹脂、シリコン樹脂、シリコンゴム、ポリオレフィン系樹脂などが用いられる。封止モールドイング体 9 には、図 4 の例で説明したのと同じものが使用される。

水分予備反応層 10 は、より具体的には、熱又は光硬化性の高分子結着剤に水分反応性物質の粉末を分散させた流動性混合液を塗布した後に熱又は光で硬化させる方法、高分子結着剤と水分反応性物質とを共蒸着させる方法などによって形成することができる。

高分子結着剤に水分反応性物質の粉末を分散させた流動性混合液を用いる場合、高分子結着剤への粉末の混合率は 0.5 ～ 5 重量％程度である。混合率が 5 重量％を越えると混合液の流動性が低下して塗布しにくくなり、0.5 重量％未満であると水分反応性物質の量が少なくなりすぎて水分侵入防止効果が小さくなる。

後者の高分子結着剤と水分反応性物質との共蒸着の場合は、水分反応性物質の混合率に特に制限はないが、水分反応性物質の混合率が大きくなると、水分予備反応層 10 が導電性を帯びてくる。それ故、図 7 のように水分予備反応層 10 が陽極 2 と接していると、陽極 2 を短絡させてしまうので、水分予備反応層 10 が絶縁性を保持する範囲内にあるように水分反応性物質の混合率を調整する必要がある。

図 7 の例では、絶縁層 5 と水分反応層 6 とからなる絶縁－水分反応層

積層体を１層しか設けていないが、図２、図５に示した例と同様に２層以上設けてもよい。そして、層数が多いほど効果も大きいことは、前述の通りである。

(実施形態８)

- 5 図８は本発明の第３の実施形態の第２の例を示す断面図である。本例は、図７に示した有機ＥＬ素子の有機物層３の外側の陽極２の一部に陽極絶縁層１１を設けるとともに、水分反応層６及び水分予備反応層１０を絶縁層５の側面まで延ばすことにより、絶縁層５の側面から有機物層３に向かって侵入しようとする水分、特に有機物層３の側面に向かって
10 侵入しようとする水分を阻止するものであり、図３、図６の例と同じ考え方に基づくものである。したがって、陽極絶縁層１１には図３の例と同じ物質が使用される。

- 前述のように、水分予備反応層１０は、水分反応性物質の混合率が大きくなると導電性を帯びてくる。それ故、図７のように水分予備反応層
15 １０と陽極２とが接している場合には、陽極２を短絡させないように、水分反応性物質の混合率を調整する必要があった。しかし、本例では、有機物層３の外側の陽極２の一部に陽極絶縁層１１を設けたので、陽極２の短絡が生じることはない。したがって、水分予備反応層１０における水分反応性物質の混合率を任意の値に増加させることができる。水分
20 反応性物質の含有率が増加すればするほど、水分侵入阻止効果が大きくなることは、容易に理解されることである。また、高分子結着剤と水分反応性物質とを共蒸着させる方法を、水分反応性物質の混合率を気にすることなく、すなわち水分予備反応層１０が導電性であるか、絶縁性であるかを気にすることなく、自由に使用することができる。

- 25 第３の実施形態では、水分予備反応層１０を設ける分だけコストが高くなるが、第２の実施の形態よりも水分侵入防止効果が優れており、有

機EL素子のさらなる長寿命化を図ることができる。

実施例

次に、本発明の実施例と比較例について説明する。

5 (実施例1)

図1に示したのと同様に、ガラス基板1の上にITOの陽極2、有機物層3、陰極4を設けて有機EL構造体を形成し、この上にトリス（8ーキノリノナト）アルミニウムを1 μ mの厚さに真空蒸着して絶縁層5を設け、この上に水分反応層6としてポーリングの電気陰性度が1.0
10 である金属カルシウムを0.5 μ mの厚さに真空蒸着した。次に、ガラス基板1上に光硬化型エポキシ樹脂を封止基板接着剤7として枠状に塗り、ガラス基板を封止基板8としてガラス基板1上に載せ、封止基板接着剤7を硬化させた。

この有機EL素子の発光部について、封止基板の接着直後にダークス
15 ポット（黒点）を30倍の拡大写真で撮影して、ダークスポットの数及び平均直径を測定した。次に、この有機EL素子を、温度40℃、湿度90%の条件で300時間及び500時間保存した後、それぞれの時間の経過時に封止基板の接着直後と同様にして拡大写真撮影を行い、ダークスポットの数及び平均直径を測定した。その結果を図9（ダークス
20 ポットの数）、図10（ダークスポットの平均直径）に示す。図9及び図10に示されるように、ダークスポットの成長は殆ど見られなかった。

(比較例1)

比較例1として、実施例1の金属カルシウムに代えて、ポーリングの電気陰性度が1.2である金属マグネシウムを用いて水分反応層6を形
25 成する他は、実施例1と同様にして有機EL素子を作製した。そして、実施例1と全く同じ条件で保存及び測定を行った。測定結果を図9、図

10に示す。図9及び図10に示されるように、水分反応層を金属マグネシウムで形成した場合は、金属カルシウムを用いた場合に比べてダークスポットの成長が著しいことが確認された。

(実施例2)

- 5 実施例1の金属カルシウムに代えて、ポーリングの電気陰性度が1.0である金属リチウムを用いて水分反応層6を形成する他は、実施例1と同様にして有機EL素子を作製した。そして、実施例1と全く同じ条件で保存及び測定を行った。その結果、ダークスポットの成長は殆ど見られなかった。

10 (実施例3)

- 実施例1の金属カルシウムに代えて、ポーリングの電気陰性度が0.9である金属ナトリウムを用いて水分反応層6を形成する他は、実施例1と同様にして有機EL素子を作製した。そして、実施例1と全く同じ条件で保存及び測定を行った。その結果、ダークスポットの成長は殆ど見られなかった。

(実施例4)

- 実施例1の金属カルシウムに代えて、ポーリングの電気陰性度が0.8である金属カリウムを用いて水分反応層6を形成する他は、実施例1と同様にして有機EL素子を作製した。そして、実施例1と全く同じ条件で保存及び測定を行った。その結果、ダークスポットの成長は殆ど見られなかった。

(実施例5)

- 実施例1の金属カルシウムに代えて、ポーリングの電気陰性度が1.0である金属ストロンチウムを用いて水分反応層6を形成する他は、実施例1と同様にして有機EL素子を作製した。そして、実施例1と全く同じ条件で保存及び測定を行った。その結果、ダークスポットの成長は

殆ど見られなかった。

(比較例 2)

実施例 1 の金属カルシウムに代えて、ポーリングの電気陰性度が 1.5 であるアルミニウムを用いて水分反応層 6 を形成する他は、実施例 1 と同様にして有機 EL 素子を作製した。そして、実施例 1 と全く同じ条件で保存及び測定を行った。その結果、ダークスポットの成長が著しいことが確認された。

(実施例 6)

実施例 6 は、図 1 に示した有機 EL 素子において、絶縁層 5 を 2 層構造にした例である。ガラス基板 1 の上に ITO の陽極 2、有機物層 3、陰極 4 を設けて有機 EL 構造体を形成し、この上にトリス(8-キノリノナト)アルミニウムを厚さ $1\ \mu\text{m}$ に真空蒸着し、その上に一酸化ゲルマニウム (GeO) を厚さ $100\ \text{nm}$ に真空蒸着することにより、2 層構造の絶縁層 5 を形成した。その上に水分反応層 6 として金属カルシウムを厚さ $500\ \text{nm}$ に真空蒸着した。次に、ガラス基板 1 上に光硬化型エポキシ樹脂を封止基板接着剤 7 として枠状に塗り、ガラス基板を封止基板 8 としてガラス基板 1 上に載せ、封止基板接着剤 7 を硬化させた。そして、実施例 1 と全く同じ条件で保存及び測定を行った。その結果、ダークスポットの成長は殆ど見られなかった。

20 (比較例 3)

実施例 6 の金属カルシウムに代えて、金属マグネシウムを用いて水分反応層 6 を形成する他は、実施例 6 と同様にして有機 EL 素子を作製した。そして、実施例 1 と全く同じ条件で保存及び測定を行った。その結果、ダークスポットの成長が著しいことが確認された。

25 (比較例 4)

実施例 6 の金属カルシウムに代えて、アルミニウムを用いて水分反応

層 6 を形成する他は、実施例 6 と同様にして有機 EL 素子を作製した。そして、実施例 1 と全く同じ条件で保存及び測定を行った。その結果、ダークスポットの成長が著しいことが確認された。

5 以上の実施例と比較例から、水分反応層 6 に使用する金属の種類によって、ダークスポットの成長に著しい差のあることがわかる。使用した金属の持つ特性を検討した結果、電気陰性度の小さいものほどダークスポットの成長抑制効果が大きいことがわかった。そして、金属カルシウムと金属マグネシウムを境にしてダークスポットの成長抑制効果に大きな差があることが確認された。ポーリングの電気陰性度でいうと、1.
10 2 が境界になる。すなわち、ポーリングの電気陰性度 1. 2 未満の金属が良いということになる。

ポーリングの電気陰性度は、元々は結合している原子が電子を引きつける能力を表すものとして定義されたものであるが、異種の 2 原子 A, B の結合エネルギーの大きさを表す尺度ともなっている。結合を作る 2
15 原子の電気陰性度の差が大きいほど、電子は一方の原子に引きつけられ、その結合のイオン性は大きい。また、電気陰性度は、その原子のもつ電子の供与性及び受容性を示す尺度となる。水分に対しては、電気陰性度の小さい金属ほど水分の電気陰性度との差が大きくなり、水分との結合力が高められるものと考えられる。

20

産業上の利用可能性

以上説明したように、本発明は、ポーリングの電気陰性度が 1. 2 未満の金属を水分反応層に使用することで、水分反応層において水分を前記金属と速やかに反応させて除去し、有機 EL 構造体に水分を侵入させ
25 ないようにしたことから、長期にわたってダークスポットのない安定した発光特性が維持される有機 EL 素子が得られる。また、前記水分反応

層と絶縁層とからなる絶縁－水分反応層積層体を複数層設けることにより、さらなる長寿命化を図ることができる。このように水分反応層にポーリングの電気陰性度が1.2未満の金属を用いることは、封止基板を使用した素子構造、モールド封止した素子構造のいずれにおいても効果がある。

また、有機EL素子の有機物層の外側の陽極の一部に陽極絶縁層を設け、水分反応層を絶縁層の側面まで延ばすことにより、絶縁層の側面から有機物層に向かって侵入しようとする水分を阻止することができ、さらに長寿命化を図ることができる。しかも、水分予備反応層における水分反応性物質の混合率を高めることができ、有機EL素子のいっそうの長寿命化を図ることができる。

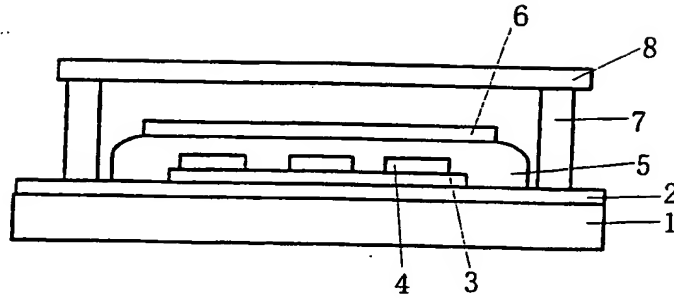
請 求 の 範 囲

1. 透明基板の表面に設けられた陽極と、陽極に対向して設けられた陰極と、陽極と陰極との間に設けられた発光層を含む有機物層とを有する
- 5 有機EL素子において、前記陽極の一部、有機物層及び陰極を含む有機EL構造体を覆うように、絶縁層とその上に設けられた水分反応層とからなる積層体（絶縁－水分反応層積層体）の少なくとも1層を設けてなることを特徴とする有機EL素子。
2. 水分反応層が、ポーリングの電気陰性度が1.2未満の金属を含む
- 10 請求項1に記載の有機EL素子。
3. 水分反応層が、実質的にポーリングの電気陰性度が1.2未満の金属のみからなる請求項2に記載の有機EL素子。
4. 水分反応層と陽極との間に陽極絶縁層を設けた請求項1～3のいずれか1項に記載の有機EL素子。
- 15 5. 陽極の一部、有機物層、陰極及び絶縁－水分反応層積層体を含む有機EL構造体の上方に封止基板を設け、この封止基板を透明基板に封止基板接着剤で固着した請求項1～4のいずれか1項に記載の有機EL素子。
6. 陽極の一部、有機物層、陰極及び絶縁－水分反応層積層体を含む有
- 20 機EL構造体を封止モールドイング剤でモールドした請求項1～4のいずれか1項に記載の有機EL素子。
7. 陽極の一部、有機物層、陰極及び絶縁－水分反応層積層体を含む有機EL構造体の上に、水分反応性物質を高分子結着剤に分散させてなる物質により形成された水分予備反応層を設けるとともに、この水分予備
- 25 反応層を封止モールドイング剤でモールドした請求項1～4のいずれか1項に記載の有機EL素子。

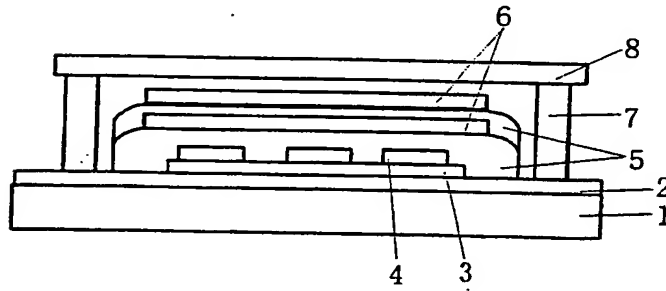
8. 水分反応性物質が、ポーリングの電気陰性度が1.2未満の金属の1種又は2種以上である請求項7に記載の有機EL素子。

9. 高分子結着剤が、熱又は光硬化性樹脂である請求項7又は8に記載の有機EL素子。

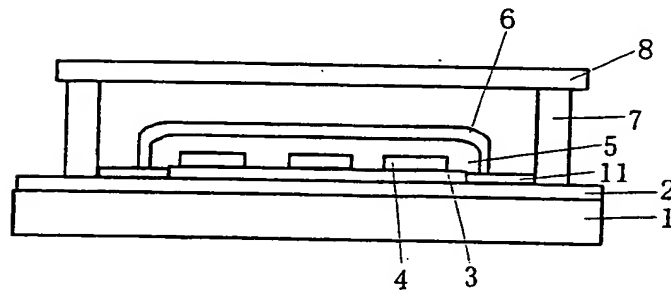
第1図



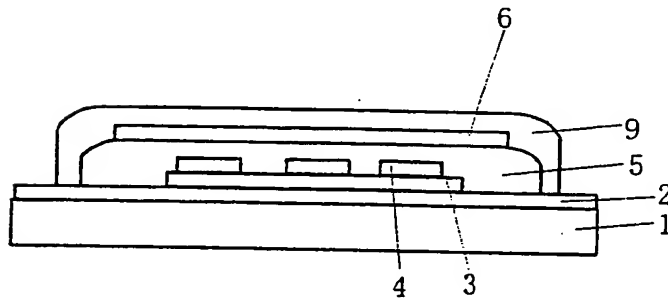
第2図



第3図

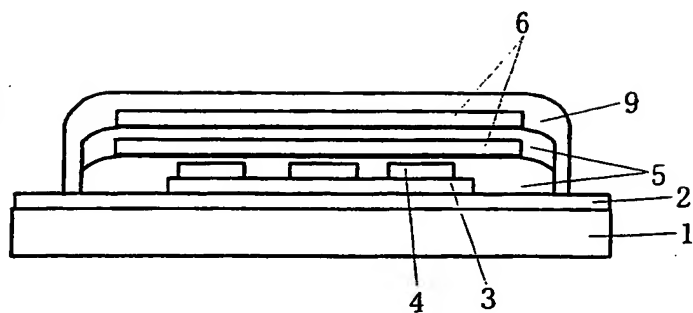


第4図

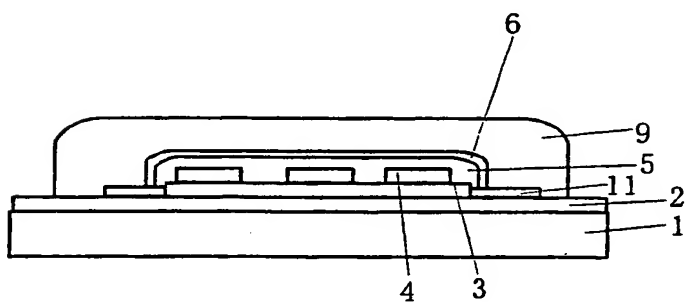


2/3

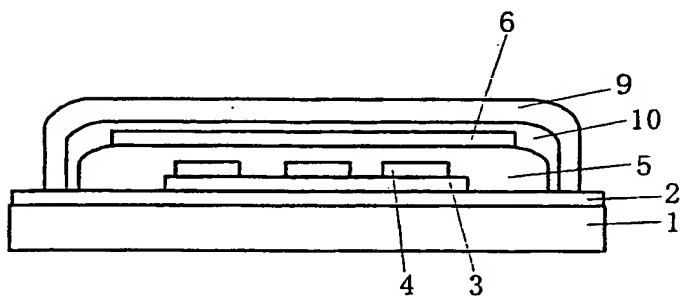
第 5 図



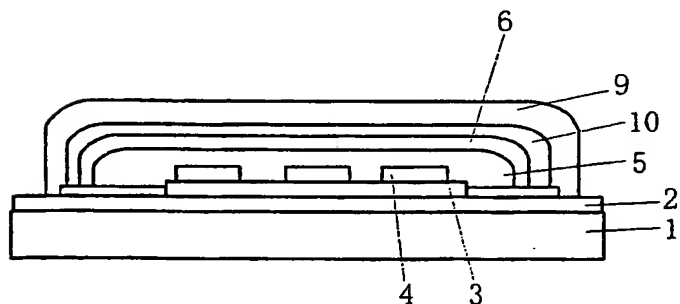
第 6 図



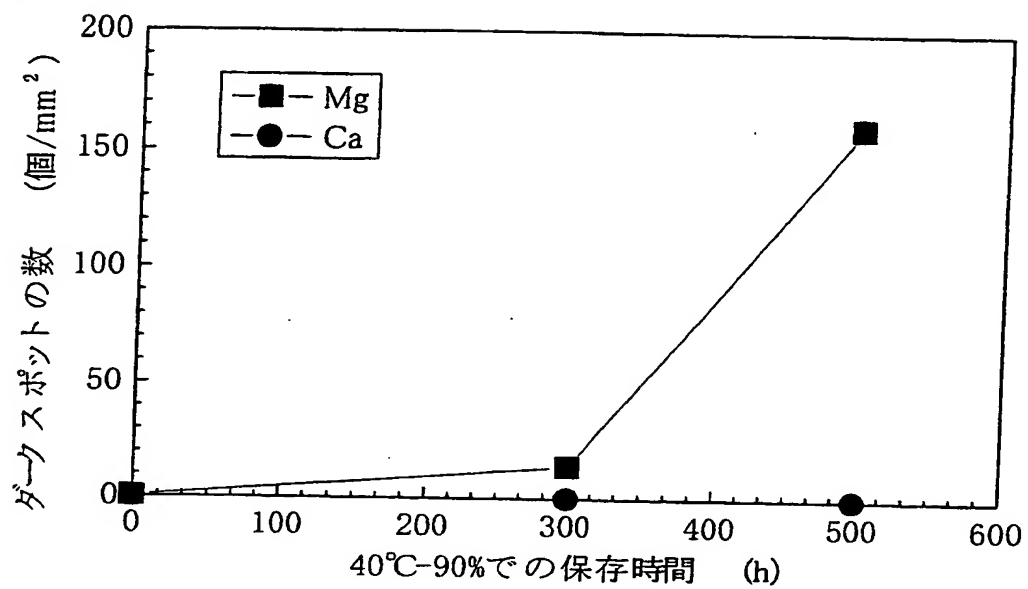
第 7 図



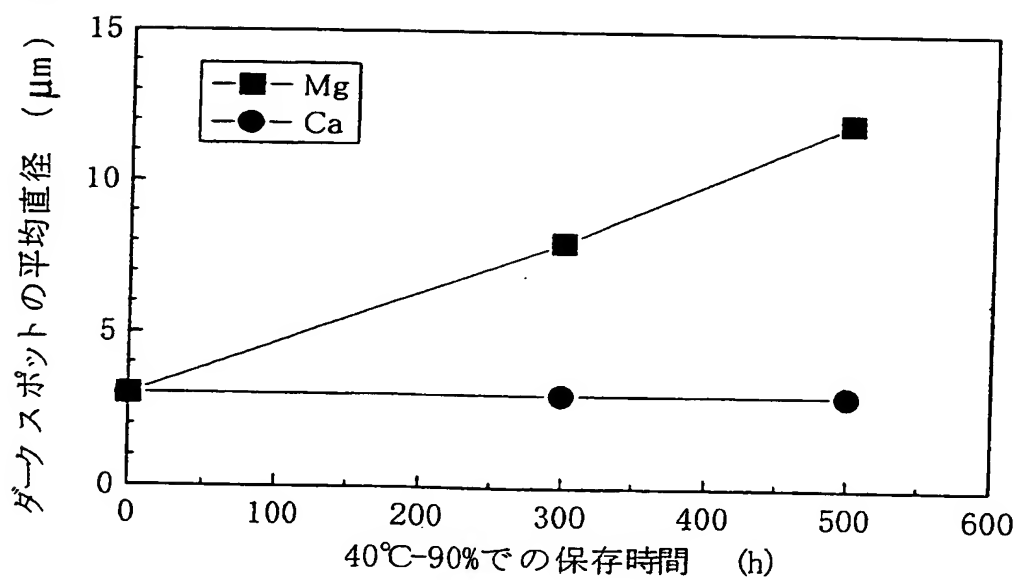
第 8 図



第9図



第10図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/02174

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ H05B 33/04

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ H05B 33/00-33/28, H01L 23/28

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1940-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2000	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	US, 5811177, A (Motorola, Inc.), 22 September, 1998 (22.09.98), Full text & JP, 9-185994, A & EP, 777281, A & KR, 97030950, A	1, 4-6 2-3, 7-9
Y	JP, 10-275680, A (Toyota Central Research and Development Laboratories, Inc.), 13 October, 1998 (13.10.98), Column 2, line 42 to Column 3, line 22; Fig. 1 (Family: none)	1, 4-6
Y	JP, 10-335060, A (Sony Corporation), 18 December, 1998 (18.12.98), Fig. 1 (Family: none)	4
Y	JP, 10-312883, A (Matsushita Electric Ind. Co., Ltd.), 24 November, 1998 (24.11.98), Claim 12; Column 8, lines 35 to 44; Fig. 4 (Family: none)	5

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to
"A" document defining the general state of the art which is not	understand the principle or theory underlying the invention
considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be
"E" earlier document but published on or after the international filing	considered novel or cannot be considered to involve an inventive
date	step when the document is taken alone
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be
cited to establish the publication date of another citation or other	considered to involve an inventive step when the document is
special reason (as specified)	combined with one or more other such documents, such
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other	combination being obvious to a person skilled in the art
means	"&" document member of the same patent family
"P" document published prior to the international filing date but later	
than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 19 April, 2000 (19.04.00)	Date of mailing of the international search report 02 May, 2000 (02.05.00)
--	---

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/02174

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, A	JP, 11-97169, A (Casio Computer Co, Ltd.), 09 April, 1999 (09.04.99), Claims (Family: none)	7, 9
A	JP, 11-35793, A (Toshiba Corporation), 09 February, 1999 (09.02.99) (Family: none)	1
A	US, 5047687, A (Eastman Kodak Company), 10 September, 1991 (10.09.91) & JP, 5-159881, A & EP, 468440, B	1

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JPO0/02174

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H05B 33/04

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H05B 33/00-33/28、H01L 23/28

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1940-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2000年
 日本国登録実用新案公報 1994-2000年
 日本国実用新案登録公報 1996-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y A	US, 5811177, A (Motorola, Inc.) 22. 9月. 1998 (22.09.98) 全文 & JP, 9-185994, A & EP, 777281, A & KR, 97030950, A	1; 4-6 2-3, 7-9
Y	JP, 10-275680, A (株式会社豊田中央研究所) 13. 10月. 1998 (13.10.98) 第2欄42行-第3欄22行, 第1図 (ファミリーなし)	1, 4-6

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

19.04.00

国際調査報告の発送日

02.05.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

今関 雅子



3X

9529

電話番号 03-3581-1101 内線 3371

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P, 10-335060, A (ソニー株式会社) 18. 12月. 1998 (18.12.98) 第1図 (ファミリーなし)	4
Y	J P, 10-312883, A (松下電器産業株式会社) 24. 11月. 1998 (24.11.98) 請求項12, 第8欄35行-44行, 第4図 (ファミリーなし)	5
P, A	J P, 11-97169, A (カシオ計算機株式会社) 9. 4月. 1999 (09.04.99) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	7, 9
A	J P, 11-35793, A (株式会社東芝) 9. 2月. 1999 (09.02.99) (ファミリーなし)	1
A	US, 5047687, A (Eastman Kodak Company) 10. 9月. 1991 (10.09.91) & J P, 5-159881, A & E P, 468440, B	1

THIS PAGE BLANK (USPTO)